05

Морфология и электрические параметры тонких алюминиевых пленок, осаждаемых на подложки при температурах от 77 до 800 K

© *М.А. Тарасов*[1], *А.А. Ломов*[2], *А.М. Чекушкин*[1], *А.А. Татаринцев*[2], *Б.М. Середин*[3], *М.А. Маркина*[1], *Е.Ф. Позднякова*[4], *А.Д. Голованова*[4], *М.В. Стрелков*[1], *Д.С. Жогов*[1], *Р.К. Козулин*[1], *К.Ю. Арутюнов*[4]

[1] Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия
[2] Физико-технологический институт им. К.А. Валиева РАН, НИЦ „Курчатовский институт“, Москва, Россия
[3] Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) им. М.И. Платова, Новочеркасск, Россия
[4] Национальный исследовательский университет „Высшая школа экономики“, Москва, Россия
E-mail: tarasov@hitech.cplire.ru

Поступило в Редакцию 15 октября 2024 г.
В окончательной редакции 25 октября 2024 г.
Принято к публикации 27 октября 2024 г.

Выполнены экспериментальные исследования базовых параметров пленок алюминия толщиной 150 nm на подложках Si(111), SiO_2/Si(001). Пленки получены методами магнетронного распыления и термического испарения в диапазоне температур от 77 до 800 K. Для охлаждения подложки до температуры жидкого азота изготовлена вакуумная вставка в установку Z400, а для нагрева до 800 K использован штатный нагреватель установки Kurt Lesker. Установлено, что криогенное осаждение адатомов алюминия по сравнению с напылением на горячую подложку позволяет снизить размер формируемых зерен с 280 до 15–20 nm, а величину шероховатости с 5.4 до 1.7 nm. Удельное сопротивление пленок и температура сверхпроводящего перехода T_c возрастают с 27 до 260 Ω·nm и с 1.2 до 2.3 K соответственно. Это связано с увеличением числа межзеренных границ в криогенных Al-пленках и может привести к возрастанию их кинетической индуктивности в 20 раз и более.

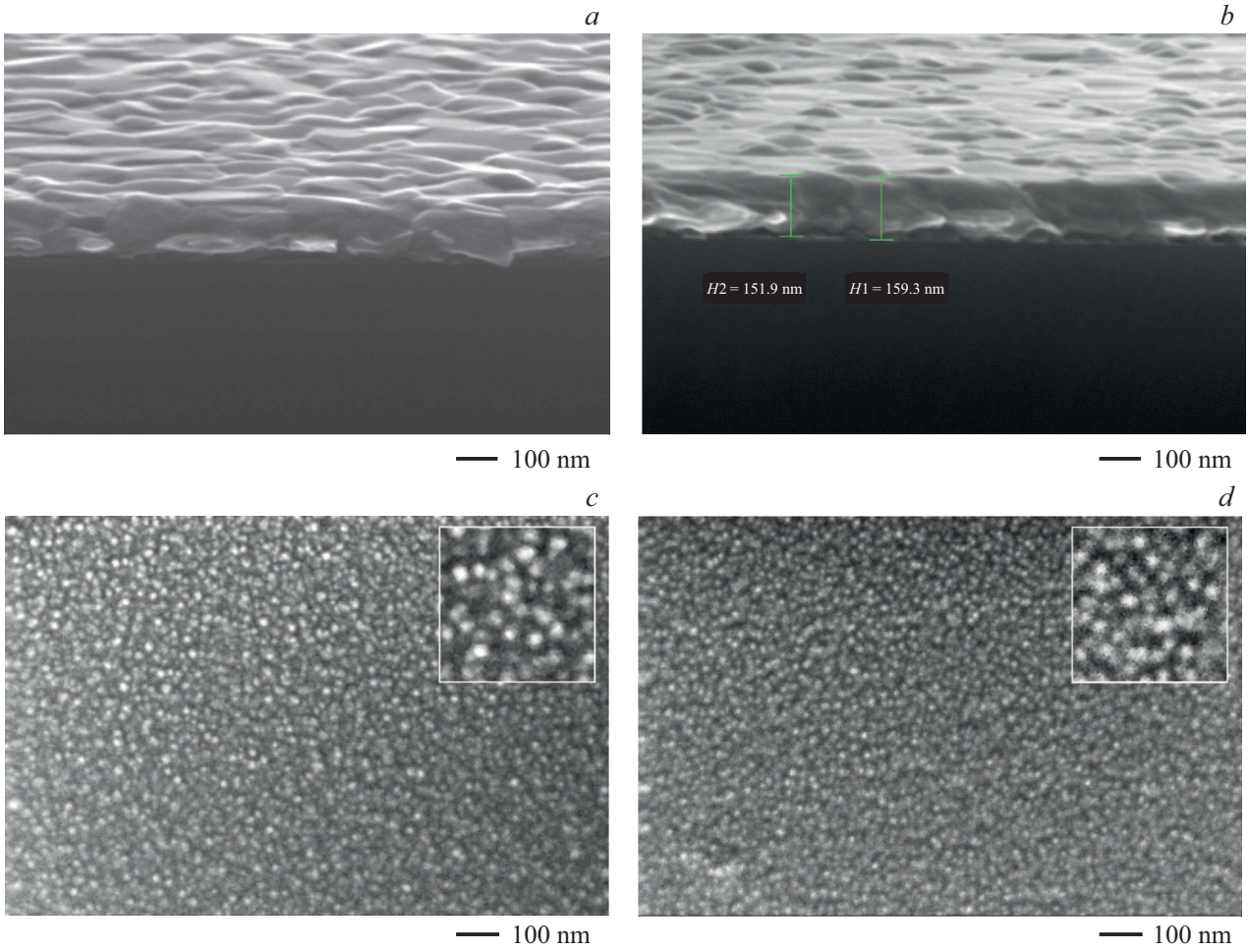
Ключевые слова: тонкие пленки, алюминий, удельное сопротивление, температура сверхпроводящего перехода, сканирующая электронная микроскопия, атомная силовая микроскопия.

DOI: 10.61011/PJTF.2025.04.59843.20149

Тонкие пленки на основе алюминия находят широкое применение в различных приложениях: от коррозийных покрытий, микро- и оптоэлектроники до элементов квантовых компьютеров. Особый интерес к ним обусловлен задачей создания компактных сверхпроводящих устройств на основе туннельных переходов. Увеличение критической температуры перехода металлических пленок в сверхпроводящее состояние является одной из приоритетных задач при отработке методик роста. Известно, что для достижения этой цели при формировании пленок алюминия может быть применен ряд методов: термическое испарение в атмосфере кислорода, напыление с допированием кремния, магнетронное распыление в атмосфере азота. Важным электрофизическим параметром тонких пленок является их кинетическая индуктивность, зависящая от их микроструктуры. В нашей работе [1] была показана возможность управления микроструктурой тонких пленок алюминия за счет формирования на поверхности подложки кремния переходных гомобуферных слоев. В настоящей работе представлены результаты измерения электрических параметров и морфологии поверхности пленок алюминия с общей толщиной 150 nm. Образцы пленок серии M, выращенные методом магнетронного распыления на подложках Si(111) при 300 K, имели переходные гомобуферные слои толщиной 20–40 nm, сформированные при температурах от 300 до 800 K аналогично [1]. Пленки алюминия серии E были сформированы методом термического испарения на подложках Si(111) и оксидированных кремниевых подложках SiO_2/Si(001) при 77 и 300 K. Изображения сколов пленок алюминия, полученные в электронном микроскопе, приведены на рисунке, а их характерные размеры представлены в таблице.

Исследование вопроса взаимосвязи между удельным сопротивлением тонких пленок и их морфологией, строением продолжается десятилетиями [2–11]. В самой ранней модели Томсона [3] рассматривалась геометрическая модель для электронов, отражающихся от двух поверхностей пленки толщиной t при постоянной длине свободного пробега λ. Более поздняя модель Фукса–Зондгеймера [4,5] уже учитывала статистическое распределение λ и морфологию поверхности пленки. В современную модель Майадаса–Шацкеса [6,7] добавились прозрачность границ зерен и их средний размер. В подробном обзоре, посвященном вкладу границ зерен в металле [8], рассматривается альтернативная феноменологическая модель Андрюса [9], согласно которой удельное сопротивление обратно пропорционально среднему диаметру зерна и постоянная пропорциональности называется параметром Андрюса.

В модели Майадаса–Шацкеса используется коэффициент отражения от межзеренной границы R. Зависимость



СЭМ-изображения скола пленок алюминия после магнетронного распыления (a, b) и термического испарения (c, d). a — M-300/300/Si(111), b — M-700/300/Si(111), c — E-77/Si(111), d — E-300/Si(111).

обратного удельного сопротивления

$$\rho_0/\rho_{ms} = 1 - 1.5\alpha + 3\alpha^2,$$

где ρ_0 — удельное сопротивление массивного алюминия, ρ_{ms} — удельное сопротивление по модели Майадаса–Шацкеса, $\alpha = (l_0/d)(R/(1-R))$, l_0 — длина свободного пробега электронов, d — размер зерна в мелкозернистой пленке. Для алюминия обычно считается, что коэффициент отражения составляет $R = 0.7-0.9$ и зависит от ориентации [10]. Влияние внутреннего размерного эффекта, обусловленного поликристаллической структурой металлических пленок, на коэффициенты отражения, прохождения и поглощения электромагнитных волн было изучено в работе [11].

Морфология поверхности образцов пленок исследовалась методами сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и атомной силовой микроскопии (АСМ). Усредненные значения размеров зерен по данным примененных методик измерения и сопротивлений на квадрат пленок толщиной 150 nm приведены в таблице. Температурные зависимости удельного сопротивления и значения критической температуры сверхпроводящего перехода измерялись в криостате замкнутого цикла HELIOX-AC-V (Oxford Instruments) сорбционного типа на ^{3}He с минимальной температурой 280 mK.

Из таблицы следует, что наиболее крупнозернистые (250 ± 30 nm) и шероховатые (RMS $= 5.0 \pm 0.5$ nm) пленки серии M были получены при напылении на гомобуферный слой, сформированный при температурах подложки 300–500 K. Наиболее гладкие пленки серии E с размером зерен 20 ± 5 nm и RMS $= 1.7 \pm 0.3$ nm получены при напылении на охлаждаемую жидким азотом подложку Si(111). Наибольшая температура сверхпроводящего перехода получена у самой мелкозернистой пленки E-77/Si(111). Сходное повышение критической температуры алюминия было получено в [12] при напылении в атмосфере кислорода и при напылении с добавлением кремния. Известно, что на свойствах пленок Al сильно сказывается наличие в них примеси кислорода и углерода. Следует отметить, что пленки с более высоким удельным сопротивлением будут обладать более высокой кинетической индуктивностью, которую можно описать простой формулой для кинетической

Параметры морфологии поверхности и величины электрических сопротивлений алюминиевых пленок, выращенных методом магнетронного распыления (М) и термического испарения (Е)

Обозначение образца	Шерохо-ватость RMS, nm	Размер зерна, nm	Удельное сопротивление, Ω·nm		Критическая температура T_c, K
			при 300 K	при 77 K	
M-800/300/Si(111)	4.2 ± 0.5	170	33	12	
M-700/300/Si(111)	4.1 ± 0.5	160	27	9	
M-600/300/Si(111)	4.7 ± 0.5	150	45	10	
M-500/300/Si(111)	5.4 ± 0.5	230	45	10	1.22 ± 0.05
M-400/300/Si(111)	5.0 ± 0.5	250	45	10	
M-300/300/Si(111)	4.3 ± 0.5	280	37	9	1.20 ± 0.05
E-77/Si(111)	1.7 ± 0.3	15	96	74	2.30 ± 0.05
E-77/SiO_2	2.6 ± 0.3	45	260	230	2.20 ± 0.05
E-300/Si(111)	1.5 ± 0.3	20	96	63	1.25 ± 0.05
E-300/SiO_2	1.3 ± 0.3	54	220	180	

Примечание. В обозначениях образцов числами указаны температуры осаждения (в K): для образцов серии М первое число соответствует температуре формирования переходных гомобуферных слоев, второе — температуре подложки при напылении основной пленки, для образцов серии Е приведена температура подложки при напылении пленки.

индуктивности на квадрат пленки

$$L_k = \hbar R_n/(\pi\Delta_0),$$

где R_n — сопротивление на квадрат пленки, Δ_0 — энергетическая щель. В этом случае можно получить значительное увеличение кинетической индуктивности L_k без необходимости формирования очень тонких пленок (менее 5 nm). В нашем случае увеличение сопротивления почти на порядок и T_c в 2 раза будет эквивалентно уменьшению толщины в 20 раз, т. е. пленка 100 nm будет иметь такую же кинетическую индуктивность, как пленка толщиной 5 nm. Тенденция увеличения разупорядочения аморфной пленки может быть продолжена вплоть до критической температуры 5 K, но дальнейшее увеличение будет приводить к снижению T_c для очень разупорядоченных пленок [13–15]. Еще одним важным свойством мелкозернистых пленок может оказаться уменьшение длины неупругой релаксации, что влияет на эффективность охлаждения сверхпроводника и улучшение характеристик электронных охладителей на основе туннельных переходов сверхпроводник–изолятор–нормальный металл [16].

Исследованные пленки алюминия, напыленные на охлаждаемые жидким азотом подложки, могут применяться для создания более компактных сверхпроводниковых микроволновых резонаторов, высокочувствительных детекторов на основе туннельных переходов сверхпроводник–изолятор–сверхпроводник и сверхпроводник–изолятор–нормальный металл–изолятор–сверхпроводник с более широким температурным интервалом и динамическим диапазоном, а также более эффективных электронных охладителей на основе туннельных переходов сверхпроводник–изолятор–нормальный металл.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (грант 075-15-2024-482).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] M. Tarasov, A. Lomov, A. Chekushkin, M. Fominsky, D. Zakharov, A. Tatarintsev, S. Kraevsky, A. Shadrin, Nanomaterials, **13** (3), 2002 (2023). DOI: 10.3390/nano13132002
[2] P.V. Andrews, Phys. Lett., **19** (7), 558 (1965). DOI: 10.1016/0031-9163(65)90776-6
[3] J.J. Thomson, Proc. Cambridge Philos. Soc., **11**, 120 (1901).
[4] K. Fuchs, Math. Proc. Cambridge Philos. Soc., **34** (1), 100 (1938). DOI: 10.1017/S0305004100019952
[5] E.H. Sondheimer, Adv. Phys., **1** (1), 1 (1952). DOI: 10.1080/00018735200101151
[6] A.F. Mayadas, M. Shatzkes, J.F. Janak, Appl. Phys. Lett., **14** (11), 345 (1969). DOI: 10.1063/1.1652680
[7] A.F. Mayadas, M. Shatzkes, Phys. Rev. B, **1** (4), 1382 (1970). DOI: 10.1103/PhysRevB.1.1382
[8] I. Bakonyi, Eur. Phys. J. Plus., **136** (4), 410 (2021). DOI: 10.1140/epjp/s13360-021-01303-4
[9] P.V. Andrews, M.B. West, C.R. Robeson, Phil. Mag., **19** (161), 887 (1968). DOI: 10.1080/14786436908225855
[10] M.A. Schneider, M. Wenderoth, A.J. Heinrich, M.A. Rosentreter, R.G. Ulbrich, Appl. Phys. Lett., **69** (9), 1327 (1996). DOI: 10.1063/1.117583
[11] И.И. Пятайкин, Журнал радиоэлектроники [Электронный журнал], № 10 (2020). DOI: 10.30898/1684-1719.2020.10.5
[12] М.А. Тарасов, Л.С. Кузьмин, Н.С. Каурова, ПТЭ, № 6, 122 (2009). [M.A. Tarasov, L.S. Kuzmin, N.S. Kaurova, Instrum. Exp. Tech., **52** (6), 877 (2009). DOI: 10.1134/S0020441209060220].

[13] А.М. Финкельштейн, Письма в ЖЭТФ, **45** (1), 37 (1987). [A.M. Finkel'stein, JETP Lett., **45** (1), 46 (1987).].
[14] A.M. Finkel'stein, Physica B, **197** (1-4), 636 (1994). DOI: 10.1016/0921-4526(94)90267-4
[15] Д.С. Антоненко, М.А. Скворцов, Письма в ЖЭТФ, **112** (7), 466 (2020). DOI: 10.31857/S1234567820190064 [D.S. Antonenko, M.A. Skvortsov, JETP Lett., **112** (7), 428 (2020). DOI: 10.1134/S0021364020190017].
[16] A.S. Vasenko, F.W.J. Hekking, J. Low Temp. Phys., **154** (5-6), 221 (2009). DOI: 10.1007/s10909-009-9869-z